#### (19) 世界知的所有権機関 国際事務局



547055

## 

(43) 国際公開日 2004 年8 月5 日 (05.08.2004)

**PCT** 

### (10) 国際公開番号 WO 2004/065300 A1

(51) 国際特許分類<sup>7</sup>: **C01F 5/22**, 5/14, C08K 3/22, 3/34, C08L 101/00, C23C 26/00

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2004/000488

(22) 国際出願日:

2004年1月21日(21.01.2004)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

特願2003-12671 2003 年1 月21 日 (21.01.2003) J

- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 矢崎 総業株式会社 (YAZAKI CORPORATION) [JP/JP]; 〒 108-8333 東京都港区 三田一丁目 4番 2 8 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 小玉 耕司 (KO-DAMA,Koji) [JP/JP]; 〒410-1194 静岡県 裾野市 御宿 1500番地 矢崎部品株式会社内 Shizuoka (JP). 江 頭誠 (EGASHIRA,Makoto) [JP/JP]; 〒852-8065 長崎 県 長崎市 横尾四丁目 7-5 Nagasaki (JP).

- (74) 代理人: 小栗 昌平, 外(OGURI,Shohei et al.); 〒107-6013 東京都港区 赤坂一丁目 1 2番32号 アーク森 ビル 1 3階 栄光特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

#### 添付公開書類:

一 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、 定期発行される 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語 のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: MAGNESIUM HYDROXIDE, MAGNESIUM HYDROXIDE/SILICA COMPOSITE PARTICLE, PROCESSES FOR PRODUCING THESE, METHOD OF SURFACE TREATMENT OF THESE, AND RESIN COMPOSITION AND ELECTRIC WIRE CONTAINING OR PRODUCED WITH THESE

(54) 発明の名称: 水酸化マグネシウム、水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子、それらの製造方法、それらの表面処理方法、およびそれらを用いた樹脂組成物、電線

(57) Abstract: Magnesium hydroxide and magnesium hydroxide/silica composite particles which can give a resin composition and electric wire excellent in flame retardancy and satisfactory in abrasion resistance, other strength, modulus, etc. The magnesium hydroxide is obtained by reacting a magnesium salt with a metal hydroxide. The magnesium hydroxide/silica composite particles are obtained, for example, by reacting a magnesium salt with a metal hydroxide in the presence of silica particles. They can be compounded with a resin to give resin compositions. The resin composition which is characterized by comprising magnesium hydroxide particles, silica particles, and a resin preferably is one in which the silica particles are a dry-process silica whose surface has been treated with methyl groups.

(57) 要約: 難燃性に優れ、かつ耐磨耗性、その他の強度や弾性率等も良好な樹脂組成物、電線とすることができる、水酸化マグネシウム、水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子、それらの製造方法、それらの表面処理方法、およびそれらを用いた樹脂組成物、電線を提供する。マグネシウム塩と金属水酸化物との反応により、またはマグネシウム塩と金属水酸化物とをシリカ粒子の存在下で反応等により得られ、樹脂とともに含有させて樹脂組成物とすることができる。水酸化マグネシウム粒子とシリカ粒子と樹脂とを含有することを特徴とする樹脂組成物は、そのシリカ粒子がメチル基で表面処理された乾式シリカであることが好ましい。

#### 明 細 書

水酸化マグネシウム、水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子、それらの製造方法、それらの表面処理方法、およびそれらを用いた樹脂組成物、電線

#### 技術分野

本発明は、水酸化マグネシウム、水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子、それらの製造方法、それらの表面処理方法、およびそれらを用いた樹脂組成物、電線に関する。詳細には、難燃性に優れ、かつ耐磨耗性、その他の強度や弾性率等も良好な樹脂組成物、電線とすることができる水酸化マグネシウム、水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子、それらの製造方法、それらの表面処理方法、およびそれらを用いた樹脂組成物、電線に関する。

#### 背景技術

電線被覆材等の樹脂組成物の技術分野において、水酸化マグネシウムは無毒性、低発煙性、非腐食性の優れた難燃剤として、従来のハロゲン系難燃剤に代わり、近年、その使用量が増加している(例えば、特許文献 1 参照。)。しかし、水酸化マグネシウム粒子の粒径は、通常 1 0  $\mu$  m以上であり、このような粒径の水酸化マグネシウム粒子は、ベースとなるポリマーに対する分散が十分でなく水酸化マグネシウムを添加したプラスチック複合体の機械的物性や成形特性を低下させることが問題となっている。

また、水酸化マグネシウムがその難燃性を発揮するにはポリマーに対して約6 0wt%もの高濃度の添加が要求され、このような高濃度の水酸化マグネシウム を添加したプラスチック複合体は、やはりその機械的物性や成形特性が低下して しまうという問題がある(例えば、特許文献2参照。)。これは水酸化マグネシ ウムの多量添加によるポリマーの相対量の減少と、水酸化マグネシウム自体の親 水性に起因している。

また、これらの問題を解決するために、高級脂肪酸等による水酸化マグネシウム表面の疎水化や、各種の助剤の混合による水酸化マグネシウム添加量の低減が

試みられている(例えば、特許文献3参照。)。しかしながら、このような試み を行なっても、十分満足できる樹脂組成物を得ることはできなかった。

[特許文献1] 特開平2000-63583号公報(第1-2頁)

[特許文献2] 特開平2001-288313号公報 (第2頁)

[特許文献3] 特開平2002-128966号公報 (第1-2頁)

本発明者等は、上記の従来の技術の問題点を解決し、難燃性に優れ、かつ耐磨耗性、その他の強度や弾性率等も良好な樹脂組成物、電線とすることができる水酸化マグネシウム、水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子、それらの製造方法、それらの表面処理方法、およびそれらを用いた樹脂組成物、電線を提供することを目的とする。

#### 発明の開示

本発明者は、上記の目的を達成するために鋭意検討した結果、水酸化マグネシウムの合成方法を工夫することにより通常よりも小さい粒径のものが得られることと、樹脂組成物にシリカ粒子を共添加することにより従来よりも水酸化マグネシウムの添加量を少なくできることを見出し、本発明を成すに至った。

即ち、本発明は以下の構成からなるものである。

- (1) マグネシウム塩と金属水酸化物との反応により合成されたことを特徴とする水酸化マグネシウム。
- (2) マグネシウム塩と金属水酸化物とを10~100℃の温度範囲で反応させたことを特徴とする前記(1)の水酸化マグネシウム。
- (3) 粒径が $10nm\sim10\mu$ mの範囲であることを特徴とする前記(1)の水酸化マグネシウム。
- (4) 反応性を有するシリコーンにより表面処理されたことを特徴とする前記
- (1)の水酸化マグネシウム。
- (5) 合成時に同時に表面処理されたことを特徴とする前記(4)の水酸化マグネシウム。
- (6) 反応性を有するシリコーンを含む溶液で表面処理されたことを特徴とする 前記(4) の水酸化マグネシウム。

(7)表面処理量が1~2wt%であることを特徴とする前記(4)の水酸化マグネシウム。

- (8) マグネシウム塩と金属水酸化物とを反応させることを特徴とする水酸化マグネシウムの製造方法。
- (9) マグネシウム塩と金属水酸化物とを10~100℃の温度範囲で反応させることを特徴とする前記(8)の水酸化マグネシウムの製造方法。
- (10)得られる水酸化マグネシウムの粒径が $10nm\sim10\mu$ mの範囲であることを特徴とする前記(8)の水酸化マグネシウムの製造方法。
- (11)マグネシウム塩と金属水酸化物とをシリカ粒子の存在下で反応させて得られたことを特徴とする水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子。
- (12) マグネシウム塩と金属水酸化物との反応により水酸化マグネシウムを合成した後の分散液とシリカを合成した後の分散液とを混合して得られたことを特徴とする水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子。
- (13) 水酸化マグネシウムとシリカを機械的に混合して得られたことを特徴とする水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子。
- (14) 水酸化マグネシウムとシリカを溶媒でスラリー状にして得られたことを 特徴とする水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子。
- (15)マグネシウム塩と金属水酸化物とを $10\sim100$  Cの温度範囲で反応させたことを特徴とする前記(11)または(12)の水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子。
- (16) 粒径が  $10 \text{ nm} \sim 10 \mu \text{ m}$  の範囲であることを特徴とする前記 (12)  $\sim$  (14) のいずれかの水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子。
- (17) 反応性を有するシリコーンにより表面処理されたことを特徴とする前記
- (12)~(14)のいずれかの水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子。
- (18) 製造時に同時に表面処理されたことを特徴とする前記 (17) の水酸化 マグネシウム・シリカ複合化粒子。
- (19) 反応性を有するシリコーンを含む溶液で表面処理されたことを特徴とする前記(17) の水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子。

(20) 表面処理量が $1\sim2$  w t %であることを特徴とする前記 (17) の水酸 化マグネシウム・シリカ複合化粒子。

- (21)マグネシウム塩と金属水酸化物とをシリカ粒子の存在下で反応させることを特徴とする水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子の製造方法。
- (22) マグネシウム塩と金属水酸化物との反応により水酸化マグネシウムを合成した後の分散液とシリカを合成した後の分散液とを混合することを特徴とする水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子の製造方法。
- (23) 水酸化マグネシウムとシリカを機械的に混合することを特徴とする水酸 化マグネシウム・シリカ複合化粒子の製造方法。
- (24) 水酸化マグネシウムとシリカを溶媒でスラリー状にすることを特徴とする水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子の製造方法。
- (25)マグネシウム塩と金属水酸化物とを10~100  $\mathbb C$  の温度範囲で反応させることを特徴とする前記(21)または(22)の水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子の製造方法。
- (26)得られる水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子の粒径が10nm~10μmの範囲であることを特徴とする前記(21)~(24)のいずれかの水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子の製造方法。
- (27) 水酸化マグネシウムまたは水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子を反応性を有するシリコーンにより表面処理することを特徴とする表面処理方法。
- (28) 水酸化マグネシウムまたは水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子の合成または製造時に同時に表面処理することを特徴とする前記(27)の表面処理方法。
- (29) 反応性を有するシリコーンを含む溶液で表面処理することを特徴とする前記(27) の表面処理方法。
- (30)表面処理量を $1\sim2$  w t %とすることを特徴とする前記(27)の表面処理方法。
- (31)前記(1)~(7)のいずれかの水酸化マグネシウムまたは前記(11)~(19)のいずれかの水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子と樹脂とを含有することを特徴とする樹脂組成物。

(32) 水酸化マグネシウム粒子とシリカ粒子と樹脂とを含有することを特徴とする樹脂組成物。

- (33) 水酸化マグネシウム粒子が表面処理されていることを特徴とする前記
- (32)の樹脂組成物。
- (34) 水酸化マグネシウム粒子がステアリン酸で表面処理されていることを特徴とする前記(33)の樹脂組成物。
- (36) 水酸化マグネシウム粒子が前記(1)~(7) のいずれかのものである ことを特徴とする前記(32)の樹脂組成物。
- (37) シリカ粒子が乾式シリカまたは湿式シリカであることを特徴とする前記
- (32)の樹脂組成物。
- (38)シリカ粒子が乾式シリカであることを特徴とする前記(37)の樹脂組成物。
- (39)シリカ粒子がメチル基で表面処理されていることを特徴とする前記(32)の樹脂組成物。
- (40) 水酸化マグネシウム粒子とシリカ粒子とを合計で30~50wt%含有することを特徴とする前記(32)の樹脂組成物。
- (41) シリカ粒子を2~20wt%含有することを特徴とする前記(40)の 樹脂組成物。
- (42) 樹脂が低密度ポリエチレンであることを特徴とする前記(31) または
- (32)の樹脂組成物。
- (43) 前記(31) または(32) の樹脂組成物からなるシース層を備える電線。

本発明の水酸化マグネシウムは、マグネシウム塩と金属水酸化物との反応により合成されたことにより、粒径が $10nm\sim10\mu m$ の範囲の従来よりも小さいものとなり、ベースとなるポリマーに対する分散が良好となり、該水酸化マグネシウムを添加したプラスチック複合体の機械的物性や成形特性を低下させることがなくなった。

また、水酸化マグネシウ粒子とシリカ粒子と樹脂とを含有する樹脂組成物は、水酸化マグネシウムの添加量が40wt%以下であっても難燃性が十分となるため、樹脂成分に対する水酸化マグネシウムの量が多くなり過ぎず、機械的物性や成形特性を低下させることがなく、寧ろ、降伏強度及び伸び率等を向上させることができた。該樹脂組成物が、比較的少量の水酸化マグネシウム添加量で難燃性が向上した理由としては、明確ではないが、樹脂中に分散しているシリカ粒子が、該樹脂組成物の燃焼時に溶融したポリマー(樹脂)の移動を妨げるため、ドリッピングを防ぎ水酸化マグネシウムの難燃効果を向上させたと考えられる。

#### 図面の簡単な説明

第1図は、実施例2における、水酸化マグネシウムと各種シリカを添加した複合体シートの難燃性を示すグラフであり、第2図は、実施例2における、水酸化マグネシウムとシリカを添加した複合体シートのシリカ添加量と難燃性の関係を示すグラフであり、第3図は、実施例2における、水酸化マグネシウムとシリカを添加した複合体シートのシリカ添加量と伸び率および降伏強度の関係を示すグラフであり、第4図は、各種化合物によって表面処理した水酸化マグネシウムを用いたLDPE/Mg(OH) $_2$ 複合体の伸び率および酸素指数の結果を示すグラフであり、第5図は、表面処理した水酸化マグネシウムを用いたLDPE/Mg(OH) $_2$ 複合体の水酸化マグネシウム量と、伸び率および酸素指数の結果を示すグラフであり、第6図は、表面処理した水酸化マグネシウムを用いたLDPE/Mg(OH) $_2$ 複合体の表面処理剤量と伸び率および酸素指数の結果を示すグラフである。

### 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明について詳細に説明する。

マグネシウム塩と金属水酸化物との反応により合成される水酸化マグネシウムの製造方法としては、マグネシウム塩と金属水酸化物を1:1~1:0.5 (マグネシウム塩:金属水酸化物) モルの範囲の水溶液にて行なうことが好ましい。ここで、マグネシウム塩に対し金属水酸化物のモル比が1より多い場合は、金属水酸化

物が反応系内に残り使用時の特性に悪影響を与えることがある。また、0.5 未満の場合は、水酸化マグネシウムの粒子径が大きくなるばかりか、収率が悪くなることがあり、量産に向いていない場合がある。

また、水溶液濃度は 0.1mol/リットル~10mol/リットル、温度 10~120℃ にて反応を行なうことが好ましい。水溶液濃度が 0.1mol/リットル未満の場合は、収率に対する水の使用量が多くかつ、処理時間が長くかかり量産的でないことがある。10mol/リットルを超える場合は、水溶液粘度が高くなり作業性に悪影響を及ぼすことがある。

反応後、余分なイオンを取り除き乾燥させることにより水酸化マグネシウムを 得ることが出来る。

余分なイオンを取り除く方法としては、特に限定はされないが、遠心分離機、 プレス、イオン透過膜、限外濾過膜等の方法が利用できる。

乾燥の方法としては、等に限定されないがオーブン、スプレードライ、スラリードライ、アグロマスタ等が周知であり、適宜利用できる。

上記の様にして合成された水酸化マグネシウムは、非常に微細で樹脂との複合 化において、機械特性、耐磨耗性、難燃性を向上させることが可能となる。

水酸化マグネシウムとシリカの複合化は、以下の方法が挙げられる。

- 1) 水酸化マグネシウム合成時にシリカ粒子を添加し、共に乾燥させる方法。
- 2) 水酸化マグネシウムを合成した分散液と別にシリカを合成した分散液を混合して、乾燥させる方法。
- 3) 水酸化マグネシウムとシリカを機械的に混合させる方法。
- 4) 水酸化マグネシウムとシリカを溶媒でスラリー状にし乾燥させる方法。
- 1)の方法として、マグネシウム塩または金属水酸化物の水溶液またはその両方の水溶液にシリカをそのまま、または水溶液としたものを添加しておき、前記の水酸化マグネシウム合成方法に基づき反応後、乾燥させる。

この時、添加するシリカの粒径は特に制限はないが、後に樹脂との複合化を考慮すると 1 n m ~ 1  $\mu$  m が適当である。

2) の方法として、水酸化マグネシウムを合成した分散液にシリカをそのまままたは分散液としたものを添加後、乾燥させる。

この時、添加するシリカの粒径は特に制限はないが、後に樹脂との複合化を考慮すると 1 n m ~ 1 m が適当である。

- 3) の方法として、水酸化マグネシウムとシリカをボールミル、アトライタ、メカノフュージョン、アグロマスタ、ジェットミル、カウンタージェットミル等の機器を用いて製造することが出来る。
- 4)の方法として、2)と同意であるが、合成水酸化マグネシウム以外の市販の水酸化マグネシウムを原料と用いた場合で、方法は2)と同じである。
- 上記1)~4)のいずれの方法でも水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子は 製造可能であり、その形態は水酸化マグネシウムにシリカの微粒子が取り巻くよ うに付いた状態となっている。

本発明に用いられるマグネシウム塩としては、特に限定されないが、例えば塩 化マグネシウム等が好ましい。

また、本発明に用いられる金属水酸化物としては、特に限定されないが、例えば水酸化ナトリウム等が好ましい。

上記水酸化マグネシウム粒子および水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子は 表面処理されていても良い。

表面処理により該粒子に付与される物質としては特に限定されないが、反応性 を有するシリコーン、ステアリン酸等が挙げられる。

反応性を有するシリコーンとしては、特に限定されないが、ジヌチルシリコーンオイル、メチルフェニルシリコーンオイル、メチルハイドロジェンシリコーンオイル、アミノ基、エポキシ基、カルボキシル基、カルビノール基、シラノール基、メタクリル基、メルカプト基、フェノール基等の官能基を有する有機変性シリコーンオイル等が挙げられる。

上記の反応性を有するシリコーンは、それ自身が持つ官能基によって、水酸化マグネシウムの分散性を向上させる。またこれらのシリコーンは焼成時にガラス成分(SiO<sub>2</sub>)となり、難燃性を向上させる作用も有する。

以下に、水酸化マグネシウム粒子および水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子の表面処理方法について説明する。

1) 粒子合成時に同時に表面処理する方法

粒子合成反応後、余分なイオンを除去した後、分散液中に表面処理剤を溶媒と 共に添加し、乾燥後100~200℃の温度で、数分から2時間の範囲で反応さ せる方法。

### 2)溶液で表面処理する方法

粒子を、表面処理剤を含む溶液に含侵させ、粒子全体が表面処理剤で覆われた後、乾燥させ $100\sim200$  C の温度で、数分から2 時間の範囲で反応させる方法と表面処理剤を含む溶液のミスト内をくぐらせた粒子を乾燥後 $100\sim20$ 0 C の温度で、数分 $\sim2$  時間の範囲で反応させる方法。

なお、水酸化マグネシウムに対する表面処理剤量は、特に限定されないが、 $0.1\sim5.0$  w t %の範囲であれば、後述の樹脂組成物に用いた場合、該樹脂組成物の伸び率が向上するため好ましく、より好ましくは $0.5\sim5.0$  w t %の範囲であり、さらに好ましくは $1\sim2$  w t %の範囲である。

また、上記の表面処理された水酸化マグネシウムの後述の樹脂組成物に対する 含有量としては、特に限定されないが、30~40wt%の範囲が好ましい。

次に、水酸化マグネシウム粒子とシリカ粒子と樹脂とを含有する樹脂組成物について説明する。

水酸化マグネシウム粒子とシリカ粒子と樹脂とを含有する該樹脂組成物に用いられる水酸化マグネシウム粒子としては、前記の通り表面処理されていることが好ましいが、中でもステアリン酸で表面処理されていることが好ましい。

水酸化マグネシウム粒子とシリカ粒子と樹脂とを含有する樹脂組成物に用いられるシリカ粒子としては、特に限定されず、乾式シリカまたは湿式シリカのいずれでも良いが、乾式シリカが非常に微細であることから、樹脂中への分散が良好となり好ましい。また、該シリカ粒子は、メチル基(CH<sub>3</sub>基)で表面処理されていることが好ましい。メチル基で表面処理された乾式シリカを用いると、樹脂とシリカの密着性が向上され、さらに難燃性が向上する。

該樹脂組成物において、水酸化マグネシウム粒子とシリカ粒子との含有量は特に限定されないが、水酸化マグネシウム粒子およびシリカ粒子に対するポリマーの相対量の減少による機械的物性や成形特性を低下させることなく、また、十分

な難燃性が付与されるようになるように適宜選択されるが、水酸化マグネシウム粒子とシリカ粒子との合計で $30\sim50w$ t%の範囲であることが好ましく、より好ましくは40wt%前後である。

また、シリカ粒子の含有量は  $2\sim20$  w t %の範囲であることが好ましく、より好ましくは 5 w t %である。

水酸化マグネシウム、水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子またはシリカ粒子と樹脂とを含有する樹脂組成物の製造方法(粒子と樹脂の複合化方法)としては、特に限定されないが、2軸ロールミル、ニーダー、バンバリーミキサー、インターミックス、1軸、2軸混練機等の一般的に用いられる加工機械を使用することができる。

水酸化マグネシウム、水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子またはシリカ粒 子と樹脂とを含有する樹脂組成物に用いられる樹脂材料としては、特に限定され ないが、ポリ塩化ビニル (PVC)、ポリエチレン (PE)、ポリプロピレン (PP)、テフロン(登録商標)、ポリエチレンテレフタレート (PET)、ナ イロン(PA)、エチレンーエチルアクリレート共重合体(EEA)、エチレン -酢酸ビニル共重合体(EVA)、ポリエーテルスルホン(PES)、ポリイミ ド、ポリフェニレンスルフィド (PPS)、ポリエーテルニトリル (PEN)、 オレフィン系エラストマー、スチレン系エラストマー、ポリブチレンテレフタレ ート (PBT) 、ナイロン6 (PA6)、ナイロン66 (PA66)、ナイロン 46 (PA46)、ナイロン6T (PA6T (HPA))、ポリフェニレンエー テル(PPE)、ポリオキシメチレン(POM)、ポリアリレート(PAR)、 ポリエーテルイミド(PEI)、液晶ポリマー(LCP)、環状オレフィン共重 合体(COC)、ポリメチルペンテン(PMP)、PPアロイ、PA66アロイ、 ポリカーボネート (РС)、アクリル、シリコーン、エチレンープロピレンージ エン三元共重合体(EPDM)、クロロプレン、ウレタン、塩素化ポリエチレン、 ニトリルまたはニトリルゴム (NBR) 及びこれらの樹脂やゴムを2種類以上組 み合せた樹脂やゴム等が挙げられる。

水酸化マグネシウム粒子とシリカ粒子と樹脂とを含有する樹脂組成物に用いられる樹脂としては、低密度ポリエチレンが好ましい。

水酸化マグネシウム、水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子またはシリカ粒子と樹脂とを含有する樹脂組成物には、その他の添加剤を加えても良い。添加剤としては特に限定されないが、老化防止剤、酸化防止剤、滑剤、充填剤等の配合薬品を使うことが出来る。

上記樹脂組成物には、さらに、珪酸マグネシウム、炭酸カルシウム等の添加剤 を加えることで、コストダウン等を図ることが可能となる。

#### [実施例]

以下に、本発明を実施例により説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

#### (実施例1)

0.75mo1/リットルの塩化マグネシウム溶液と1.5mo1/リットルの水酸化ナトリウム溶液を混合して60℃で反応させた。その結果、粒径が50~150nmの水酸化マグネシウムを得ることができた。

#### (比較例1)

水酸化マグネシウム鉱石(ブルーナイト)からの再合成を行なった。その結果、得られた水酸化マグネシウムの粒径は $500\sim1500$ nmの範囲であった。(実施例 2)

ベースポリマーとして低密度ポリエチレン (LDPE、 三井化学製:ミラソン 3530, 密度:0.924 g/cm³) を、また実施例1で得られた水酸化マグネシウムを ステアリン酸で表面処理したものと下記表1に示す各種の乾式および湿式シリカを用いて複合体を作製した。

表1

	粒子径 (μm)	かさ密度 (g/L)	表面処理
乾式シリカ1	0.012	50	-
乾式シリカ2	0.012	50	CH <sub>3</sub> 基
湿式シリカ1	_	120-160	
湿式シリカ2	9-12	_	

まず、ベースポリマーを120  $\mathbb C$   $\sim 130$   $\mathbb C$   $\infty 2$  本ロールを用いて溶融させ、これに所定量の水酸化マグネシウムとシリカを添加して混練し、複合体シートを作製した。さらにこのシートを $150 \times 150$  mm、厚さ1 mmまたは3 mmの型枠に入れ、圧縮成形してサンプルシートを作製した。成形条件は170  $\mathbb C$   $\sim 30$  kg、5 分間の予備加圧の後、150 kg  $\sim 2$  分間とし、その後、室温まで5 分間で冷却した。難燃性および機械的特性を評価するために、このサンプルシートから試験片を作製した。難燃性測定の試験片は、3 mm厚のシートより80  $\times 50$  mmの短冊を打ち抜き、JIS K 7201-2 に従いD型キャンドル燃焼試験機(東洋精機製作所製)を用いて酸素指数を評価した。機械的特性は、JIS K 7113 に規定されるダンベル3 号型試験片を1 mm厚シートより打ち抜き、ストログラフR型(東洋精機製作所製)を用いて、引っ張り試験を行なった。引っ張り速度は150 mm/min とし、試験片中央部に150 mm 150 mm 150 mm 150 mm/min とし、試験片中央部に150 mm 150 mm/min とし、試験片中央部に150 mm 150 mm 150 mm/min とし、試験片中央部に150 mm 150 mm/min とし、試験片中央部に150 mm 150 mm/min とし、試験片中央部に150 mm 150 mm/min とし、試験片中央部に150 mm/min 150 mm/min 150

第1図に LDPE にステアリン酸で表面処理した水酸化マグネシウムを35 wt%、各種シリカをそれぞれ5 wt%添加した複合体シートの酸素指数の結果を示す。また、比較のために、LDPE にステアリン酸表面処理水酸化マグネシウムのみをそれぞれ40 wt%、50 wt%添加した場合の結果も示す。これらの結果から、水酸化マグネシウムのみを添加した場合よりも、その一部をシリカで置き換えた方が酸素指数は高くなり、難燃性が向上した。特に乾式シリカでこの効果は大きく、CH<sub>3</sub>基で表面処理した乾式シリカでは難燃性がさらに向上した。これは非常に微細な乾式シリカ粒子がLDPE 中に分散しており、複合体燃焼時にシリカ粒子が溶融したポリマーの移動を妨げるため、ドリッピングを防ぎ水酸化マグネシウムの難燃効果を向上させたと考えられる。CH<sub>3</sub>基で表面処理した乾式シリカを用いると、LDPE とシリカの密着性が向上され、さらに難燃性が向上したと考えられる。一方、湿式シリカでは、シリカ粒子が大きくなるため乾式シリカに比べて難燃性が劣ったと考えられる。

第2図に、LDPE-ステアリン酸表面処理水酸化マグネシウム-CH<sub>3</sub>表面処理乾式シリカ複合体の酸素指数に及ぼす乾式シリカの添加量の影響を示す。この場合、LDPE に対する水酸化マグネシウムと乾式シリカの添加量の合計は常に40 wt%

の一定とした。この結果、乾式シリカが5 wt%のときに酸素指数が最も高くなることがわかった。乾式シリカの添加量が5 wt%以下の場合は、燃焼時のポリマーの移動の抑制効果が小さく、一方、シリカの添加量が5 wt%以上では、水酸化マグネシウムの相対量が少なくなり、難燃効果が減少して酸素指数が増加したと考えられる。

これらの複合体の降伏強度と伸び率の関係を第3図に示す。乾式シリカの添加 は複合体の降伏強度を増大させ、伸び率を向上させた。特に、伸び率は少量のシ リカの添加で大幅に向上し、また、添加量が増加してもあまり低下しなかった。 降伏強度はシリカの添加量に比例して増加した。これはポリマー中に微細分散す るシリカによる補強効果のためと考えられる。

以上の結果から CH<sub>3</sub>表面処理乾式シリカの添加は LDPE - 水酸化マグネシウム 複合体の難燃性を向上させるために有効であることわかった。また、複合体の強 度および伸び率も改善されることがわかった。

次に、水酸化マグネシウムの表面処理の検討の結果について説明する。

第4図に、各種化合物によって表面処理した水酸化マグネシウムを用いたLD PE/Mg (OH)  $_2$ 複合体の伸び率および酸素指数の結果を示す。

実施例1で得られた水酸化マグネシウムに対し、第4図に示す各種化合物を処理量が1w t%となるように表面処理を施した。またLDPE/Mg (OH)  $_2$  複合体中のMg (OH)  $_2$ の割合を40w t%とした。なお、伸び率および酸素指数の測定方法は、前記の通りとした。

第4図の結果より、水酸化マグネシウムを各種化合物、特にシリコーンオイルによって表面処理したことにより、LDPE/Mg(OH) $_2$ 複合体の酸素指数が向上し、難燃性の向上に効果があった。また、伸び率も未処理の水酸化マグネシウムを用いたものに比べて向上した。表面処理剤として、シリコーンオイルの中でも、メチルハイドロジェンポリシロキサン(MHS)が最も好ましかった。

また、第5図に、表面処理した水酸化マグネシウムを用いたLDPE/Mg (OH)₂複合体の水酸化マグネシウム量と、伸び率および酸素指数の結果を示す。表面処理としては、第4図に示す検討結果にて、最も好ましいとされたメチルハイドロジェンポリシロキサン(MHS)を用いた。また、水酸化マグネシウ

ムに対するMHSの表面処理量も第4図に示す検討事項と同様に、1wt%とした。なお第5図中の破線は、水酸化マグネシウム非添加のLDPEのレベルを示すものである。

第5図に示す通り、MHSで表面処理された水酸化マグネシウム量が多くなるほど、LDPE/Mg (OH)  $_2$  複合体の酸素指数が向上し、難燃性の向上に効果があった。しかし、伸び率については、MHS表面処理Mg (OH)  $_2$  が多くなりすぎると下がる傾向が観られた。それでも、MHS表面処理Mg (OH)  $_2$  添加量が  $30\sim40$  wt %の範囲であれば、表面未処理Mg (OH)  $_2$  が同添加量のものと比べ、伸び率の低下を少なくすることができた。この程度の伸び率の低下は、LDPE系材料の使用上、許容できる程度のものであり、MHS表面処理Mg (OH)  $_2$  添加による難燃性向上効果の方が格段に有意義である。

さらに、第6図に、表面処理した水酸化マグネシウムを用いたLDPE/Mg  $(OH)_2$ 複合体の表面処理剤量と伸び率および酸素指数の結果を示す。表面処理としては、第4図に示す検討結果にて、最も好ましいとされたメチルハイドロジェンポリシロキサン (MHS) を用いた。また、LDPE/Mg  $(OH)_2$ 複合体におけるMHS表面処理Mg  $(OH)_2$ 量は、第5図に示す検討結果において、好ましい添加量範囲とされた40wt%とした。

第6図に示す通り、MHS表面処理量が、2wt%までは、多くなるほど、LDPE/Mg (OH)  $_2$ 複合体の酸素指数が向上し、難燃性の向上に効果があった。しかし、2wt%を超えると、それ以上の添加しても効果は得られなかった。また、伸び率についても、MHS表面処理量が、2wt%までは、多くなるほど、向上したが、5wt%では若干下がる傾向が観られた。このことから、MHS表面処理量としては、 $1\sim 2wt%$ の範囲が好ましいことが分かる。

### 産業上の利用可能性

本発明の水酸化マグネシウムは、マグネシウム塩と金属水酸化物との反応により合成されたことにより、粒径が $10nm\sim10\mu$ mの範囲の従来よりも小さいものとなり、ベースとなるポリマーに対する分散が良好となり、該水酸化マグネ

シウムを添加したプラスチック複合体の機械的物性や成形特性を低下させないも のとすることができた。

また、本発明の水酸化マグネシウ粒子とシリカ粒子と樹脂とを含有する樹脂組成物は、水酸化マグネシウムの添加量が40wt%以下であっても難燃性が十分となるため、樹脂成分に対する水酸化マグネシウムの量が多くなり過ぎず、機械的物性や成形特性を低下させることがなく、寧ろ、降伏強度及び伸び率等を向上させることができた。

### 請 求 の 範 囲

- 1. マグネシウム塩と金属水酸化物との反応により合成されたことを特徴とする水酸化マグネシウム。
- 2. マグネシウム塩と金属水酸化物とを10~100℃の温度範囲で反応させたことを特徴とする請求の範囲第1項記載の水酸化マグネシウム。
- 3. 粒径が $10 \text{ nm} \sim 10 \mu \text{m}$  の範囲であることを特徴とする請求の範囲第1項記載の水酸化マグネシウム。
- 4. 反応性を有するシリコーンにより表面処理されたことを特徴とする請求の範囲第1項記載の水酸化マグネシウム。
- 5. 合成時に同時に表面処理されたことを特徴とする請求の範囲第4項記載の水酸化マグネシウム。
- 6. 反応性を有するシリコーンを含む溶液で表面処理されたことを特徴とする請求の範囲第4項記載の水酸化マグネシウム。
- 7. 表面処理量が  $1 \sim 2 \le 0$  t %であることを特徴とする請求の範囲第 4 項記載の水酸化マグネシウム。
- 8. マグネシウム塩と金属水酸化物とを反応させることを特徴とする水酸化マグネシウムの製造方法。
- 9. マグネシウム塩と金属水酸化物とを10~100℃の温度範囲で反応させることを特徴とする請求の範囲第8項記載の水酸化マグネシウムの製造方法。
- 10. 得られる水酸化マグネシウムの粒径が  $10 \text{ nm} \sim 10 \mu \text{ m}$ の範囲であることを特徴とする請求の範囲第 8 項記載の水酸化マグネシウムの製造方法。
- 11. マグネシウム塩と金属水酸化物とをシリカ粒子の存在下で反応させて得られたことを特徴とする水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子。
- 12. マグネシウム塩と金属水酸化物との反応により水酸化マグネシウムを合成した後の分散液とシリカを合成した後の分散液とを混合して得られたことを特徴とする水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子。
- 13. 水酸化マグネシウムとシリカを機械的に混合して得られたことを特徴とする水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子。

14. 水酸化マグネシウムとシリカを溶媒でスラリー状にして得られたことを特徴とする水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子。

- 15. マグネシウム塩と金属水酸化物とを $10\sim100$   $\mathbb C$  の温度範囲で反応させたことを特徴とする請求の範囲第11 項または第12 項記載の水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子。
- 16. 粒径が10nm~10μmの範囲であることを特徴とする請求の範囲第1 2項~第14項のいずれかに記載の水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子。
- 17. 反応性を有するシリコーンにより表面処理されたことを特徴とする請求の 範囲第12項~第14項のいずれかに記載の水酸化マグネシウム・シリカ複合化 粒子。
- 18. 製造時に同時に表面処理されたことを特徴とする請求の範囲第17項記載の水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子。
- 19. 反応性を有するシリコーンを含む溶液で表面処理されたことを特徴とする請求の範囲第17項記載の水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子。
- 20. 表面処理量が1~2wt%であることを特徴とする請求の範囲第17項記載の水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子。
- 21. マグネシウム塩と金属水酸化物とをシリカ粒子の存在下で反応させることを特徴とする水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子の製造方法。
- 22. マグネシウム塩と金属水酸化物との反応により水酸化マグネシウムを合成 した後の分散液とシリカを合成した後の分散液とを混合することを特徴とする水 酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子の製造方法。
- 23. 水酸化マグネシウムとシリカを機械的に混合することを特徴とする水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子の製造方法。
- 24. 水酸化マグネシウムとシリカを溶媒でスラリー状にすることを特徴とする水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子の製造方法。
- 25. マグネシウム塩と金属水酸化物とを10~100℃の温度範囲で反応させることを特徴とする請求の範囲第21項または第22項記載の水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子の製造方法。

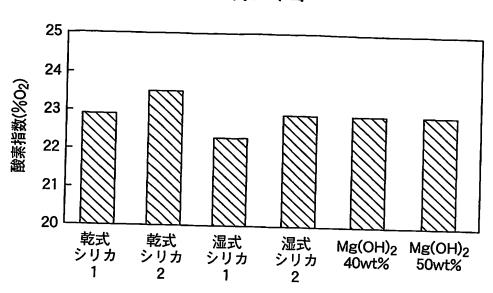
26. 得られる水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子の粒径が10nm~10μmの範囲であることを特徴とする請求の範囲第21項~第24項のいずれかに記載の水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子の製造方法。

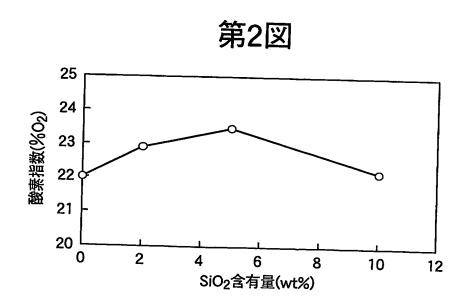
- 27. 水酸化マグネシウムまたは水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子を反応性を有するシリコーンにより表面処理することを特徴とする表面処理方法。
- 28. 水酸化マグネシウムまたは水酸化マグネシウム・シリカ複合化粒子の合成または製造時に同時に表面処理することを特徴とする請求の範囲第27項記載の表面処理方法。
- 29. 反応性を有するシリコーンを含む溶液で表面処理することを特徴とする請求の範囲第27項記載の表面処理方法。
- 30.表面処理量を1~2wt%とすることを特徴とする請求の範囲第27項記載の表面処理方法。
- 31. 請求の範囲第1項〜第7項のいずれかに記載の水酸化マグネシウムまたは 請求の範囲第11項〜第19項のいずれかに記載の水酸化マグネシウム・シリカ 複合化粒子と樹脂とを含有することを特徴とする樹脂組成物。
- 32. 水酸化マグネシウム粒子とシリカ粒子と樹脂とを含有することを特徴とする樹脂組成物。
- 33. 水酸化マグネシウム粒子が表面処理されていることを特徴とする請求の範囲第32項に記載の樹脂組成物。
- 34. 水酸化マグネシウム粒子がステアリン酸で表面処理されていることを特徴とする請求の範囲第33項に記載の樹脂組成物。
- 35. 表面処理量が水酸化マグネシウムに対し1~2wt%であることを特徴とする請求の範囲第33項記載の樹脂組成物。
- 36. 水酸化マグネシウム粒子が請求の範囲第1項〜第7項のいずれかに記載のものであることを特徴とする請求の範囲第32項に記載の樹脂組成物。
- 37. シリカ粒子が乾式シリカまたは湿式シリカであることを特徴とする請求の範囲第32項に記載の樹脂組成物。
- 38.シリカ粒子が乾式シリカであることを特徴とする請求の範囲第37項に記載の樹脂組成物。

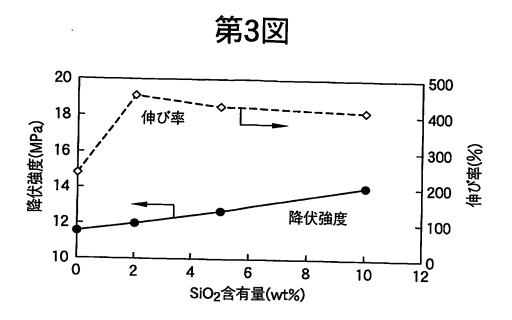
39. シリカ粒子がメチル基で表面処理されていることを特徴とする請求の範囲第32項に記載の樹脂組成物。

- 40. 水酸化マグネシウム粒子とシリカ粒子とを合計で30~50wt%含有することを特徴とする請求の範囲第32項に記載の樹脂組成物。
- 41. シリカ粒子を2~20wt%含有することを特徴とする請求の範囲第40項に記載の樹脂組成物。
- 42. 樹脂が低密度ポリエチレンであることを特徴とする請求の範囲第31項または第32項に記載の樹脂組成物。
- 43. 請求の範囲第31項または第32項に記載の樹脂組成物からなるシース層を備える電線。

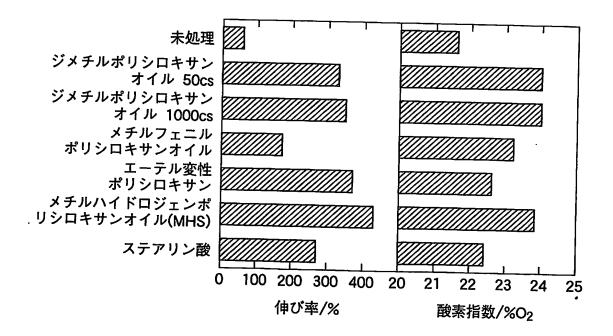


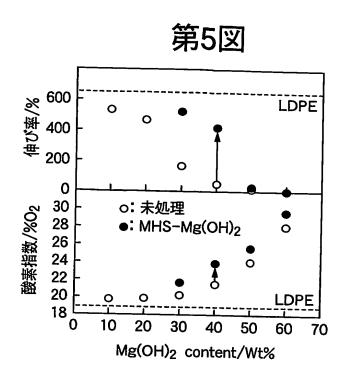




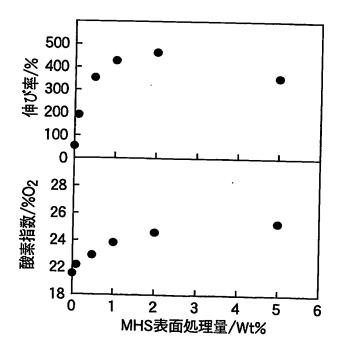


# 第4図









International application No.
PCT/JP2004/000488

4 67 46			PCT/J	P2004/000488
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl <sup>7</sup> C01F5/22, C01F5/14, C08K3/22, C08K3/34, C08L101/00, C23C26/00				
	According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC			
	DS SEARCHED			
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  Int.Cl <sup>7</sup> C01F5/22, C01F5/14, C08K3/22, C08K3/34, C08L101/00,  C23C26/00, C09C1/02, C08K9/04				
Koka	Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2004 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2004			
Electronic	data base consulted during the international search (na	me of data base and, where pro	acticable, sea	rch terms used)
C. DOCU	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category*	Citation of document, with indication, where			Relevant to claim No.
Х	JP 8-259224 A (Sumitomo Che 08 October, 1996 (08.10.96),		Í	1-3,8-10,31,
Y	Claims; Par. Nos. [0011], [0 (Family: none)	016], [0018] to		43 4-7,21,25, 26,36
X	JP 1-320219 A (The Nippon C		1 Co.,	11-16,22-24, 31-33,43
Y	26 December, 1989 (26.12.89) Claims (Family: none)			17-21,25,26
X Y	JP 53-142454 A (Asahi Chemic 12 December, 1978 (12.12.78) Claim 1; page 2, lower right from the bottom to page 3, up (Family: none)	Column first 1	100	27-30 4-7,17-20
× Furthe	er documents are listed in the continuation of Box C.			
		See patent family ann		
"A" docume consider der der der der der der der der der	A"  document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance earlier document but published on or after the international filing date  """  later document published after the international filing date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention cannot be date  """  document unlish most the substitution of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered novel or cannot be considered to involve an invention.			
cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  "Y"  document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other considered to involve an inventive step when the document is step when the document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is				
P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed combination being obvious to a person skilled in the art document member of the same patent family			killed in the art	
Date of the ad 16 Fe	Date of the actual completion of the international search 16 February, 2004 (16.02.04)  Date of mailing of the international search report 02 March, 2004 (02.03.04)			report 03.04)
Vame and ma	illing address of the ISA/	Authorized officer		_··
Japan	nese Patent Office	·		İ
acsimile No.	•	Telephone No		·

International application No.
PCT/JP2004/000488

		PCT/JP2004/000488
	tion). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant particles	assages Relevant to claim N
X Y	JP 2001-151952 A (Fujikura Ltd.), 05 June, 2001 (05.06.01), Claims 2, 4; Par. Nos. [0006], [0007], [0010 example 4 (Family: none)	32-35,37-43
x	JP 2001-310977 A (Dow Corning Toray Silicon Ltd.), 06 November, 2001 (06.11.01), Claims 1, 3, 6; Par. Nos. [0017], [0020] to (Family: none)	43
x	JP 2-279515 A (Naikai Engyo Kabushiki Kaish 15 November, 1990 (15.11.90), Full text (Family: none)	a), 1-3,8-10,31
x	JP 7-61812 A (Tateho Kagaku Kogyo Kabushiki Ka 07 March, 1995 (07.03.95), Claims; Par. No. [0001]; example 1 (Family: none)	aisha), 1-3,8-10,31
·		
DOTAG		

International application No.

PCT/JP2004/000488

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)
This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:
1. Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be corried out an extent that no meaningful international search can be corried out an extent that no meaningful international search can be corried out an extent that no meaningful international search can be corried out an extent that no meaningful international search can be corried out an extent that no meaningful international search can be corried out an extent that no meaningful international search can be corried out an extent that no meaningful international search can be corried out an extent that no meaningful international search can be corried out an extent that no meaningful international search can be corried out an extent that no meaningful international search can be corried out an extent that no meaningful international search can be corried out an extent that no meaningful international search can be corried out an extent that no meaningful international search can be corried out an extent that no meaningful international search can be corrected out an extent that the prescribed requirements to such a search can be considered in the corrected out and the corrected out an extent that the corrected out an extent that the corrected out are corrected out an extent that the corrected out are corrected out and the corrected out and the corrected out are corrected out are corrected out are corrected out and the corrected out are corrected out and the corrected out are corrected out and the corrected out are corrected out a
extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
·
3. Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).
Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)
This International Searching Authority found multiple inventions in the search of the search o
I TAND DUD ICCU MALLETS (II CITALING I TILL PALSEA FA MARMATINI I I I I I I I I I I I I I I I I I I
matters of claims 11-26 relate to composite particles. However, the subject
composite particles: claim 31 relates to a composite hydroxide/silica
a resin; claims 32-42 relate to a composition comprising magnesium hydroxide particles, silica, and a resin; and claim 43 relates to
(continued to extra sheet)
1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable
claims.
2. X As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment
of any additional fee.
3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers
only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
·
·
4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is
restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:
•
Remark on Protest The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
No protest accompanied the payment of additional search fees.
i de la companya de

International application No. PCT/JP2004/000488

# Continuation of Box No. II of continuation of first sheet(1)

an electric wire. In view of the fact that the subject matter of claim 1 is not novel (JP 2-279515 A), etc., the subject matters of claims 1-10 and those of claims 11-43 are considered to have no technical relationship involving one or more identical or corresponding special technical features. Therefore, they cannot be considered to be so linked as to form a single general inventive concept.

Form PCT/ISA/210 (extra sheet) (July 1998)

## 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. Cl'C01F5/22, C01F5/14, C08K3/22, C08K3/34, C08L101/00, C23C26/00

#### 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl'C01F5/22, C01F5/14, C08K3/22, C08K3/34, C08L101/00, C23C26/00, C09C1/02, C08K9/04

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1922-1996年

日本国公開実用新案公報

1971-2004年

日本国実用新案登録公報

1996-2004年

日本国登録実用新案公報

1994-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連する	ると認められる文献	
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の領証が関連するしませ スの思い	関連する
X	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号
	JP 8-259224 A (住友化学工業株式会社) 1996.10.08,特許請求の範囲,【0011】,【0016】,【0018】-【0020】 (ファミリーなし)	1-3, 8-10, 31,
Y		43 4-7, 21, 25, 26
X	   JP 1-320219 A(日本化学工業株式会社)1989. 12. 26,特許請求の範囲   (ファミリーなし)	36 11-16、22-24、
Y		31-33,43
x	JP 53-142454 A(旭化成工業株式会社)1978.12.12,請求項1,第2頁	17-21, 25, 26
Y	右下欄下から第1行一第3頁左上欄第6行(ファミリーなし)	27-30 4-7,17-20
<u> </u> l		

## 区欄の続きにも文献が列挙されている。

## パテントファミリーに関する別紙を参照。

#### \* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献 (理由を付す)
- 「O」ロ頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

### の日の後に公表された文献

- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献 国際調査を完了した日 国際調査報告の発送日 16, 02, 2004 02. 3. 2004 国際調査機関の名称及びあて先 特許庁審査官(権限のある職員) 日本国特許庁(ISA/JP) 4 G 9439 安齋 美佐子 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 電話番号 03-3581-1101 内線 3416

		国际山嶼省 FCI/JF20	04/000488
C (続き).	関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示		関連する 請求の範囲の番号
X Y	TD 2001_151052 A/##-#-A-#>>>		32-35, 37-43 36
Х	JP 2001-310977 A(東レ・ダウコーニング・シリコーン株式会社) 2001. 11. 06, 請求項1, 3, 6, 【0017】, 【0020】 - 【0025】 (ファミリーな し)		32, 37, 38, 42, 43
x	JP 2-279515 A(ナイカイ塩業株式会社)1990.11.15,全文 (ファミリーなし)		1-3, 8-10, 31
X	JP 7-61812 A (タテホ化学工業株式会社) 1995.03.07,特許請求の 範囲,【0001】実施例 1 (ファミリーなし)		1-3, 8-10, 31
	•		
,		İ	
}			
	<del></del>		

第11欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)
法第8条第3項 (PCT17条(2)(a)) の規定により この国際関土により
法第8条第3項 (PCT17条(2)(a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。
1. □ 請求の範囲 は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。 つまり、
2. □ 請求の範囲は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. □ 請求の範囲は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に 従って記載されていない。
第Ⅲ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見(第1ページの3の続き)
次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。
請求の範囲第1-10に係る発明は、マグネシウム塩と金属水酸化物との反応によって合成された水酸化マグネシウムに関するものであるのに対し、第11-26に係る発明は、水酸化マグネシウムとシリカリカ複合粒子に関するもの、第27-30に係る発明は、水酸化マグネシウム又は水酸化マグネシウムとシリカリカ複合粒子の表面処理方法に関するもの、第31項は、水酸化マグネシウム又は水酸化マグネシウム・シ・シリカ複合粒子と樹脂との組成物に関するもの、第32-42項は、水酸化マグネシウム粒子とシリカでないこと(JP 2-279515 A)等を考慮すれば、第1-10項に係る発明と第11-43項に係る発明は、一又念を形成するように連関しているものとは認められない。
1. <a>出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。</a>
2. X 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4.   出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。
追加調査手数料の異議の申立てに関する注意